

# Diffusion Raman stimulée dans le champ évanescent de nanofibres

Thèse de doctorat soutenue le 19/12/2012 par Liye Shan

Résumé :

Les non-linéarités optiques sont très étudiées depuis plus de 50 ans. Ces études couvrent aussi bien des aspects fondamentaux que de nombreuses applications, comme la réalisation de sources optiques, les télécommunications, les capteurs ... Toutefois, malgré les nombreux travaux déjà menés, il reste encore de vastes domaines de l'optique non linéaire à explorer. C'est le cas des « non-linéarités évanescentes », qui font l'objet de cette thèse. Lorsque la lumière se propage dans une structure dont l'une des directions est inférieure à celle de la longueur d'onde, le champ optique évanescent se propage à l'extérieur de la structure. Ce champ évanescent peut sonder le milieu entourant la structure. Des effets optiques non linéaires peuvent ainsi être excités dans ce milieu, à l'extérieur de la structure guidante. En plus de leur intérêt du point de vue physique, ces non-linéarités présentent d'autres propriétés très attractives :

- elles permettent de sonder les propriétés non linéaires du milieu entourant la structure, ce qui permet d'envisager la réalisation de nouveaux capteurs ;

- la grande variété de milieux pouvant entourer la structure offre un degré de liberté supplémentaire pour concevoir des dispositifs.

Ce travail de thèse a été rendu possible en réunissant les savoir-faire de deux groupes de recherche :

- Le groupe de recherche dirigé par le professeur Limin Tong, au « State Key Lab of Modern Optical Instrumentation » dans le département d'ingénierie optique de l'Université de Zhejiang (Hangzhou, Chine). L. Tong est l'un des pionniers dans la réalisation de nanofibres étirées. Ces nanofibres sont des fibres optiques étirées jusqu'à ce que leur diamètre devienne comparable à celle de la longueur d'onde. La lumière guidée possède alors un champ évanescent très intense qui enrobe la nanofibre. Ces nanofibres sont donc des structures de choix pour étudier les « non-linéarités évanescentes ».

- Le groupe de recherche « Matériaux non linéaires et applications » ou Manolia du Laboratoire Charles Fabry de l'Institut d'Optique (Palaiseau, France). Manolia possède une forte expérience dans l'étude des non-linéarités optiques et de leurs applications. En particulier, Manolia a étudié des configurations utilisant des fibres à cristal photonique à cœur creux remplies de liquides pour l'étude de plusieurs effets non linéaires, dont la diffusion Raman stimulée. A strictement parler, ces structures sont bien sûr différentes mais ont plusieurs points communs avec les nanofibres. Leur bonne connaissance nous donne donc une référence pour l'étude des non-

linéarités évanescences. L'effet Raman est l'effet non linéaire que nous avons choisi pour débiter l'étude de ces non-linéarités évanescences.

Cette thèse est donc née d'une collaboration entre ces deux groupes de recherche, collaboration qui a débuté en 2008. L. Tong et Guillaume Vienne (du même laboratoire) ont passé plusieurs mois à montrer aux chercheurs de Manolia leur technique d'étirage de fibre, manuelle à l'époque. A partir de ces premières expériences et des premiers calculs faits par Manolia, il est apparu que la démonstration expérimentale de ces non-linéarités évanescences à partir de nanofibres serait bien plus délicate et plus longue que prévu. Un travail complet de modélisation de ces non-linéarités ainsi que le développement d'une plateforme de tirage dédiée aux nanofibres sont à faire intégralement. Ce sujet de thèse a donc été proposé dans ce cadre.

Des nanofibres avec des diamètres inférieurs au micromètre peuvent être étirées sur des longueurs de plusieurs dizaines de centimètres. Le champ évanescent, très intense, peut engendrer des non-linéarités très significatives. De telles « non-linéarités évanescences » sont des outils de choix pour sonder la fluorescence atomique de gaz. Elles sont aussi utilisées pour des mesures en spectroscopie, mais à notre connaissance, elles n'ont jamais été employées pour réaliser de l'effet Raman ou des processus paramétriques. Ce champ est encore actuellement très peu exploré.

Les nanofibres présentent d'autres aspects intéressants :

- Elles ont une structure simple avec une symétrie circulaire. Il est ainsi aisé de les modéliser, ce qui minimise les incertitudes et rend les interprétations des expériences plus aisées.

- Elles sont étirées à partir d'une fibre optique standard, de type télécommunications. L'injection et la collection de lumière se font à travers les extrémités non étirées de la fibre.

- Ces injection et collection sont voisines de 100%, la puissance optique dans la nanofibre est ainsi connue de façon précise.

- Elles sont produites à faible coût. Plusieurs nanofibres de caractéristiques différentes peuvent ainsi être étirées et testées.

- De nouveaux dispositifs peuvent être imaginés à partir de ces nanofibres : des micro-boucles ou micro-nœuds, des enroulements autour de barreaux par exemple.

Le but ultime de cette thèse était d'étudier la réalisation et le fonctionnement du convertisseur Raman décrit en figure 1. La lumière se propage de la gauche vers la droite. Nous utilisons comme pompe un laser émettant dans le vert à 532 nm. La nanofibre est étirée à partir d'une fibre standard télécom. La lumière se propage tout d'abord dans le mode de cœur fondamental de la fibre non étirée. La plupart de l'énergie est confinée dans le cœur dont le rayon est environ de 4  $\mu\text{m}$ , le diamètre de la fibre étant typiquement de 125  $\mu\text{m}$ . La lumière entre alors dans la

première section évasée dont le diamètre est réduit progressivement. Cette réduction modifie la structure transverse du mode et la focalisation augmente l'intensité du champ ( $W/m^2$ ). La lumière atteint alors la plus petite partie de la nanofibre. Il s'agit d'une section uniforme, dont le rayon est plus petit que 500 nm. Dans cette section, le mode optique possède un fort champ évanescent qui sonde le milieu externe à la nanofibre, des liquides dans nos expériences. La diffusion Raman stimulée est excitée par ce champ évanescent. Au départ, selon le processus de diffusion Raman spontanée, les photons de pompe verts, en interagissant avec les vibrations moléculaires, diffusent en d'autres photons d'énergie plus faible. Certains de ces photons diffusés sont aussi guidés par la nanofibre. Ces photons sont alors amplifiés par amplification Raman stimulée au détriment des photons de pompe. Dans ce processus il est possible de convertir une grande partie des photons de pompe initiaux verts en un faisceau de plus grande longueur d'onde, appelé faisceau Stokes. Les deux faisceaux sont alors collectés par la section évasée de droite, se propagent dans la partie non étirée de la fibre dans des modes de cœur de cette fibre et peuvent être ensuite analysés.

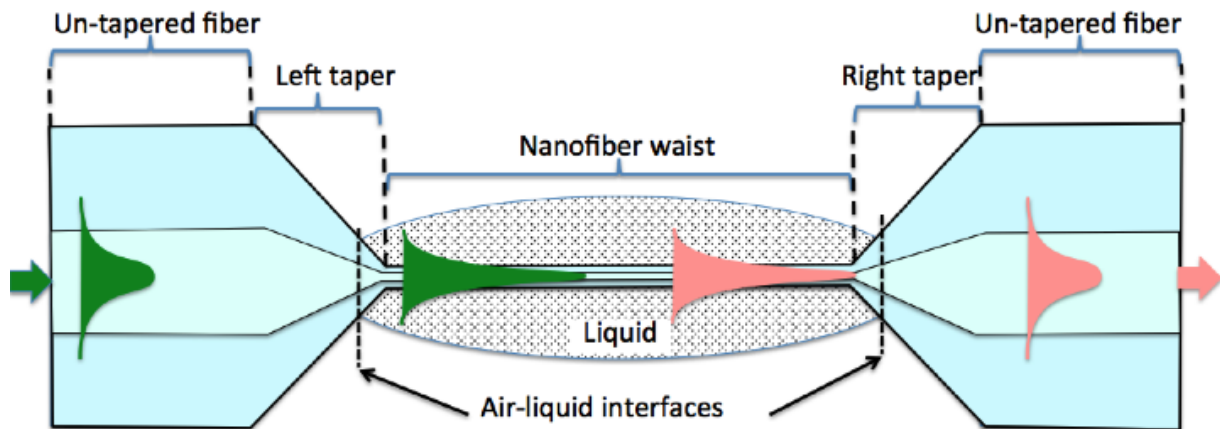


Figure 1. Schéma de principe de l'expérience de mise en évidence et d'étude d'une non-linéarité évanescente : la diffusion Raman stimulée dans le champ évanescent d'une nanofibre. Les interfaces « air-liquide » sont les endroits auxquels le milieu extérieur vu par le mode change de l'air au liquide (ou du liquide vers l'air).

La structure du manuscrit de thèse reflète l'approche scientifique qui a été mise en œuvre pour faire cette démonstration expérimentale. Nous avons essayé de progresser étape par étape, en essayant d'identifier et de maîtriser toutes les difficultés.

Dans un premier chapitre, nous rappelons les principales propriétés de guidage de la lumière dans les fibres et nanofibres. Nous utilisons la théorie bien référencée de la propagation vectorielle de la lumière dans les fibres. Nous nous sommes plus spécifiquement attachés à décrire la propagation de la lumière dans les sections évasées du dispositif afin d'identifier les conditions de minimisation des pertes. Dans le chapitre suivant nous analysons l'interaction non-linéaire du champ évanescent avec le milieu entourant la nanofibre. Nous décrivons comment l'énergie de la pompe se transfère progressivement vers le faisceau Stokes. Nous déduisons de ces

calculs les spécifications requises pour nos nanofibres, à savoir un rayon de l'ordre de quelques centaines de nanomètres et une longueur d'une dizaine de centimètres. Atteindre ces caractéristiques est déjà un défi à part entière et a constitué une grande partie de ce travail de thèse. Après un état de l'art des systèmes existants, nous avons développé notre propre plateforme d'étirage de nanofibres, dédiée aux expériences sur les non linéarités évanescentes. La description de cette plateforme est faite dans ce quatrième chapitre.

Enfin, nous avons mis en évidence de façon expérimentale des effets de diffusion Raman stimulée dans le champ évanescent de différents liquides. La première expérience est menée avec une nanofibre baignant dans l'éthanol pur. Notre choix s'est porté sur ce liquide car il n'est pas toxique et son gain Raman ainsi que son indice de réfraction sont assez bien connus dans la littérature, ce qui facilite les comparaisons avec la théorie. Dans la seconde expérience, le liquide Raman est le toluène. Son indice de réfraction étant supérieur à celui de la silice, nous l'avons dilué dans de l'éthanol afin d'abaisser l'indice du mélange sous celui de la silice et conserver ainsi un guidage par réflexion total interne. La fraction volumique du toluène dans le mélange est de 50%, l'éthanol étant inactif car son gain Raman est plus faible. Le tableau 1 regroupe les dimensions des nanofibres réalisées pour ces deux expériences à une longueur d'onde de pompe de 532 nm.

	Nanofibre 1	Nanofibre 2
Liquide Raman	éthanol	toluène
Rayon visé (nm)	220	350
Longueur de la nanofibre (cm)	6	6

*Tableau 1. Dimensions des nanofibres.*

Les nanofibres sont réalisées à partir de fibres télécom standard SMF-28. La fibre est tout d'abord tendue entre deux platines de translation motorisées et commandées par ordinateur. La partie centrale de la fibre est dénudée et chauffée par une flamme pour être ramollie. Les deux platines étirent alors la fibre jusqu'à atteindre le diamètre souhaité. Le profil de la nanofibre est parfaitement contrôlé par le mouvement relatif des deux platines. L'injection du faisceau de pompe et la collection des différents faisceaux de sortie se font facilement par les extrémités non étirées de la fibre. Nous obtenons ainsi des transmissions du système total fibre+nanofibre+fibre voisines de 90%, même lorsque le diamètre de la nanofibre est seulement de quelques centaines de nm.

Le dispositif expérimental est présenté en fig. 2. Le laser de pompe est un microlaser Nd :YAG émettant à  $1,06\ \mu\text{m}$  doublé par un cristal de KTP pour une émission à  $532\ \text{nm}$ . La fréquence de répétition est de  $500\ \text{Hz}$  et la largeur temporelle de l'impulsion à mi-hauteur est de  $510\ \text{ps}$ . La lumière infrarouge résiduelle est filtrée. Une lame demi-onde associée à un cube polariseur permet de contrôler la puissance injectée dans la fibre. La fibre SMF-28 étant multimode à  $532\ \text{nm}$ , nous avons inséré un filtre transmettant uniquement le mode fondamental HE<sub>11</sub> dans la nanofibre. En sortie de fibre, la lumière est envoyée vers différents moyens de caractérisation : un analyseur de spectre optique (OSA) via une fibre multimode courte pour éviter les effets non linéaires parasites, une caméra CCD associée à des filtres colorés pour visualiser les champs lointains aux différentes longueurs d'onde ou une photodiode. Une fois étirée, la nanofibre est plongée dans une cuve remplie de liquide et la puissance injectée est augmentée progressivement.

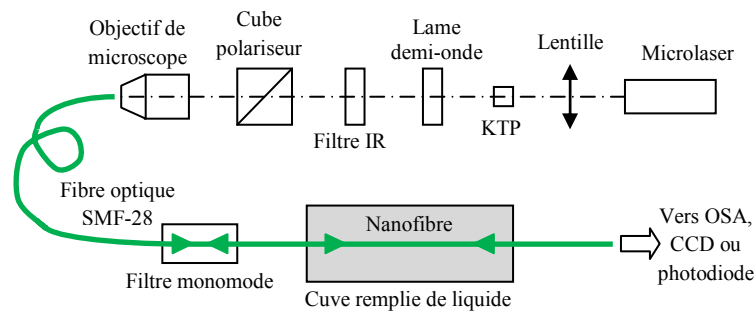


Fig. 2. Dispositif expérimental. Les triangles verts représentent les sections évasées de la fibre.

Le spectre de sortie mesuré à l'OSA obtenu avec la nanofibre 1 est représenté en fig. 3. Ce spectre met en évidence la raie de la pompe à  $532\ \text{nm}$  ainsi que la raie du premier ordre Stokes de l'éthanol à  $630\ \text{nm}$ . Le second ordre Stokes à  $772\ \text{nm}$  n'a jamais été observé car le gain Raman modal associé à cet ordre est environ deux fois plus petit que pour le premier ordre selon nos calculs. L'énergie de pompe nécessaire à son apparition est alors bien au-delà du seuil de dommage de la nanofibre.

Le spectre de sortie obtenu avec la nanofibre 2 est représenté en fig. 4. Les gains Raman modaux du toluène étant plus importants que ceux de l'éthanol, nous observons une cascade Raman : la pompe à  $532\ \text{nm}$  excite le premier ordre Stokes du toluène à  $562\ \text{nm}$  qui excite à son tour le second ordre Stokes du toluène à  $596\ \text{nm}$ .

Dans les deux cas, les champs lointains des différents ordres Stokes présentent un profil gaussien monomode spatial comme attendu par nos calculs, bien que l'excitation ait lieu à l'extérieur de la fibre.

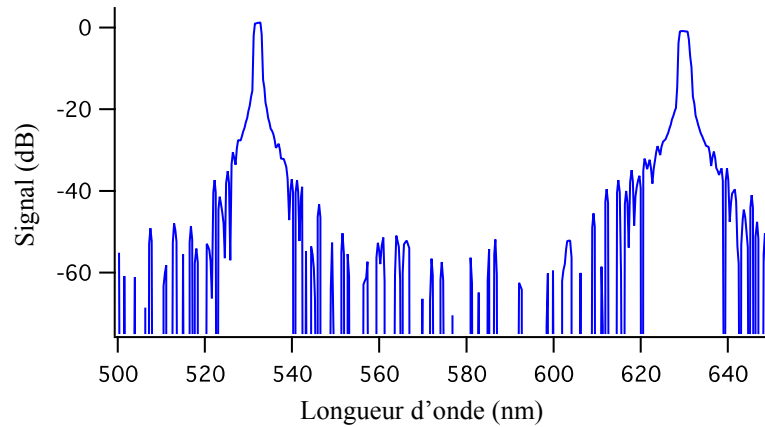


Fig. 3. Spectre de sortie de la nanofibre 1 baignant dans l'éthanol. L'énergie de l'impulsion incidente est de  $0,22 \mu\text{J}$ .

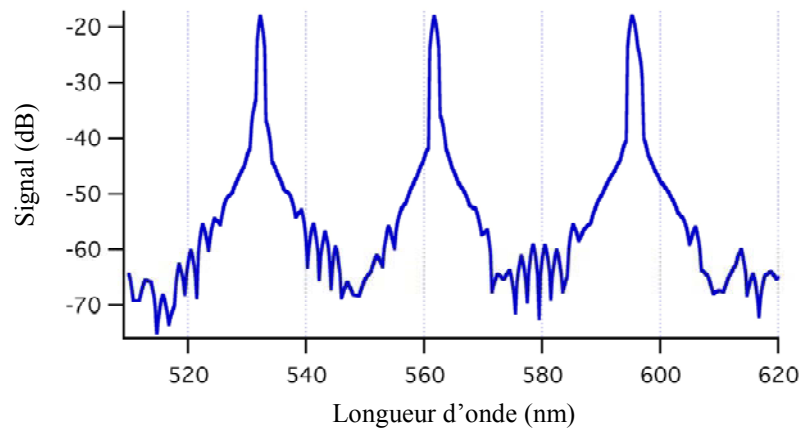


Fig. 4. Spectre de sortie de la nanofibre 2 baignant dans un mélange de toluène dissous dans l'éthanol. L'énergie de l'impulsion incidente est de  $0,54 \mu\text{J}$ .

En conclusion, les objectifs de la thèse ont été atteints. Nous avons développé un outil de simulation numérique de propagation et d'interaction non-linéaire dans les nanofibres qui nous a permis de dimensionner le système à réaliser pour mettre en évidence la diffusion Raman stimulée évanescence dans un liquide. Nous avons développé une plateforme d'étirage dédiée à ces expériences, puis fait les premières démonstrations expérimentales de diffusion Raman stimulée dans le champ évanescent de nanofibres, ce qui était le but de cette thèse.